

**Process for isolating hydrogen**

Patent Number: DE3602352  
Publication date: 1987-07-30  
Inventor(s): BENKMANN CHRISTIAN DIPL ING (DE); WATSON ALLAN DR (DE); KANDZIORA  
BERND DIPL ING (DE)  
Applicant(s): LINDE AG (DE)  
Requested  
Patent: DE3602352  
Application  
Number: DE19863602352 19860127  
Priority Number  
(s): DE19863602352 19860127  
IPC Classification: C01B3/56; C01B3/32; B01D53/02; B01J20/34  
EC Classification: B01D53/04, C01B3/48, C01B3/56  
Equivalents:

---

**Abstract**

---

A process is proposed for isolating hydrogen by catalytic reforming of hydrocarbons with subsequent conversion of the synthesis gases thus formed and subsequently separating off the hydrogen by means of a pressure-change adsorption process. The residual gas obtained in the pressure-change adsorption is compressed and at least in part recirculated to the reforming or conversion and at least in part fed to a further pressure-change adsorption.

---

Data supplied from the esp@cenet database - I2

DOCKET NO: E-42069

SERIAL NO: \_\_\_\_\_

APPLICANT: R. Bruck et al.

LERNER AND GREENBERG P.A.

P.O. BOX 2480

HOLLYWOOD, FLORIDA 33022

TEL. (954) 925-1100

①⑨ BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND

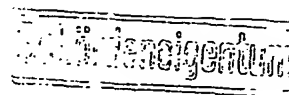


DEUTSCHES  
PATENTAMT

⑫ Off nl gungsschrift  
⑪ DE 3602352 A 1

⑳ Aktenzeichen: P 36 02 352.3  
㉑ Anmeldetag: 27. 1. 86  
㉒ Offenlegungstag: 30. 7. 87

⑤① Int. Cl. 4:  
**C 01 B 3/56**  
C 01 B 3/32  
B 01 D 53/02  
// B 01 J 20/34



DE 3602352 A 1

㉗① Anmelder:  
Linde AG, 6200 Wiesbaden, DE

㉗② Erfinder:  
Watson, Allan, Dr., 8012 Ottobrunn, DE; Kandziora,  
Bernd, Dipl.-Ing., 8000 München, DE; Benkmann,  
Christian, Dipl.-Ing., 8032 Gräfelfing, DE

⑤④ Verfahren zur Gewinnung von Wasserstoff

Es wird ein Verfahren zur Gewinnung von Wasserstoff durch katalytische Reformierung von Kohlenwasserstoffen mit nachfolgender Konvertierung der dabei gebildeten Synthesegase und anschließender Abtrennung von Wasserstoff mittels eines Druckwechseladsorptionsverfahrens vorgeschlagen. Dabei wird das bei der Druckwechseladsorption anfallende Restgas verdichtet und mindestens teilweise in die Reformierung oder Konvertierung zurückgeführt und mindestens teilweise einer weiteren Druckwechseladsorption zugeleitet.

DE 3602352 A 1

1. Verfahren zur Gewinnung von Wasserstoff durch katalytische Reformierung von Kohlenwasserstoffen, Konvertierung der dabei gebildeten Synthesegase und nachfolgender Abtrennung von Wasserstoff mittels eines Druckwechseladsorptionsverfahrens, dadurch gekennzeichnet, daß das bei der Druckwechseladsorption anfallende Restgas verdichtet und mindestens teilweise in die Reformierung oder Konvertierung zurückgeführt und mindestens teilweise einer weiteren Druckwechseladsorption zugeführt wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß ein nicht zurückgeführter Teilstrom der weiteren Druckwechseladsorption zugeführt wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der rückgeführte Teilstrom nach seiner Reformierung und/oder Konvertierung der weiteren Druckwechseladsorption zugeführt wird.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die beiden Druckwechseladsorptionsanlagen austrittsseitig gekoppelt sind.

#### Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Gewinnung von Wasserstoff durch katalytische Reformierung von Kohlenwasserstoffen, Konvertierung der dabei gebildeten Synthesegase und nachfolgender Abtrennung von Wasserstoff mittels eines Druckwechseladsorptionsverfahrens.

Bei der Gewinnung von Wasserstoff aus leichten Kohlenwasserstoffen wie Erdgas, LPG oder Benzinfraktionen wird ein solches Verfahren häufig großtechnisch eingesetzt.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein derartiges Verfahren so auszugestalten, daß bei möglichst geringen Investitionskosten eine hohe Wasserstoffausbeute erzielt werden kann.

Diese Aufgabe wird dadurch gelöst, daß das bei der Druckwechseladsorption anfallende Restgas verdichtet und mindestens teilweise in die Reformierung oder Konvertierung zurückgeführt und mindestens teilweise einer weiteren Druckwechseladsorption zugeführt wird.

In einer ersten Ausgestaltung der Erfindung kann das Restgas der Druckwechseladsorption in zwei Teilströme aufgeteilt werden, wobei der erste Teilstrom in die Reformierung bzw. Konvertierung zurückgeführt wird, während der zweite Teilstrom der weiteren Druckwechseladsorptionsanlage zugeleitet wird. Der zweite Teilstrom sollte dabei so groß sein, daß Inertbestandteile des Synthesegases über das Restgas der weiteren Druckwechseladsorptionsanlage so weit ausgetragen werden, daß keine Anreicherung dieser Komponenten in der Anlage erfolgt.

In einer anderen Ausgestaltung der Erfindung ist vorgesehen, daß der rückgeführte Teilstrom nach seiner Umwandlung in der Reformierung und/oder Konvertierung der weiteren Druckwechseladsorptionsanlage zugeführt wird.

Ein wesentlicher Vorteil des erfindungsgemäßen Verfahrens ist darin zu sehen, daß aus dem Spülgas der Druckwechseladsorptionsanlage noch zusätzlicher Wasserstoff gewonnen wird, was entweder direkt durch Zuführung des Spülgases in eine weitere Adsorptions-

anlage erfolgt oder nach Umwandlung der im Spülgas noch enthaltenen Kohlenwasserstoffe und/oder Kohlenmonoxid zu Wasserstoff.

Gegenüber einem üblichen Verfahren der eingangs genannten Art fällt beim erfindungsgemäßen Verfahren ein relativ kleiner abzuführender Spülgasstrom aus der zweiten Druckwechseladsorptionsanlage an. Eine übliche Verwendung des Spülgases besteht darin, den Reformier zu beheizen. Dies ist jedoch oftmals ungünstig, weil dadurch ein Teil des durch die Anlage geführten Gases letztendlich nur zu Heizzwecken verwendet wird. Dies trifft insbesondere dann zu, wenn preisgünstige andere Heizgase zur Verfügung stehen. Bei einer üblichen Wasserstoffausbeute von etwa 80% bei der Druckwechseladsorption werden somit etwa 20% des gebildeten Wasserstoffs nur zu Heizzwecken verwendet.

Bei Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens läßt sich dieser Wasserstoff sowie gegebenenfalls zusätzlicher Wasserstoff bilden, womit die Gesamtausbeute beispielsweise von etwa 80 auf über 95% Wasserstoff ansteigt. Sofern eine bestimmte Menge Wasserstoff benötigt wird, bedeutet dies andererseits eine entsprechende Reduzierung der Anlagenteile.

In beiden Druckwechseladsorptionsanlagen wird Wasserstoff als nicht adsorbierbare Komponente in reiner Form gewonnen. Es ist deshalb in vielen Fällen vorteilhaft, diese beiden Anlagen austrittsseitig zu koppeln, wie es in der DE-OS 30 46 267 beschrieben ist.

Weitere Einzelheiten der Erfindung werden nachfolgend anhand der in den Figuren schematisch dargestellten Ausführungsbeispiele erläutert.

Es zeigen:

Fig. 1 eine erste Ausführungsform der Erfindung und

Fig. 2 eine weitere Ausführungsform der Erfindung.

Bei dem in Fig. 1 dargestellten Ausführungsbeispiel wird über Leitung 1 ein Einsatzgas, beispielsweise Erdgas, LPG, Raffineriegase oder Benzinfraktionen nach Vermischung mit Wasserdampf einem Dampfreformierer 2 zugeführt. Durch die endotherme katalytische Reaktion wird ein im wesentlichen Wasserstoff, Oxide des Kohlenstoffs und zum Teil nicht umgesetzte Kohlenwasserstoffe sowie gegebenenfalls vorhandene Inertgasbestandteile enthaltendes Synthesegas erzeugt. Das Gas wird über Leitung 3 abgezogen und nach Vermischung mit einem über Leitung 4 herangeführten Rückföhrgas einer Hochtemperaturkonvertierung 5 zugeführt, um im Gas enthaltenes Kohlenmonoxid mit Wasserdampf zu Wasserstoff und Kohlendioxid umzusetzen. Das Gas gelangt dann über Leitung 6 in eine CO<sub>2</sub>-Wäsche 7 und anschließend über Leitung 8 in eine erste Druckwechseladsorptionsanlage 9. Gereinigter Wasserstoff tritt über Leitung 10 aus und wird über die Produktleitung 11 abgeführt. Das bei der Adsorption anfallende Restgas gelangt über Leitung 12 zu einem Kompressor 13 und wird danach in zwei Teilströme aufgeteilt. Ein erster Teilstrom wird über Leitung 4 vor die Hochtemperaturkonvertierung 5 zurückgeführt und gemeinsam mit dem über Leitung 3 herangeföhrten Gas weiter verarbeitet, während der zweite Teilstrom über Leitung 14 einer zweiten Druckwechseladsorptionsanlage 15 zugeführt wird. Im Restgas noch enthaltener Wasserstoff wird dabei abgetrennt und über Leitung 16 abgezogen, um schließlich gemeinsam mit dem über Leitung 10 abgezogenen Wasserstoff über Leitung 11 als Produkt abgeführt zu werden. Das Restgas der zweiten Druckwechseladsorptionsanlage 15 gelangt über Leitung 17 zunächst in den Regenerierteil der CO<sub>2</sub>-Wä-

sche 7, wo es als Strippgas eingesetzt wird und dann über Leitung 19 zum Dampfreformierer 2, um dort als Heizgas eingesetzt zu werden. Zusätzliches Heizgas wird über Leitung 20 zugeführt.

Das in der Fig. 2 dargestellte Ausführungsbeispiel unterscheidet sich von demjenigen der Fig. 1 dadurch, daß das Restgas 12 der ersten Druckwechseladsorptionsanlage nach der Verdichtung über Leitung 21 zum Dampfreformer zurückgeführt wird. Für die Umsetzung dieses Gases sind im Reformer 1 einige zusätzliche Rohre 1a vorgesehen. Das reformierte Gas tritt über Leitung 3a ebenfalls in die Hochtemperaturkonvertierung ein, wozu ein gesonderter Querschnitt 5a vorgesehen ist. Das umgewandelte Restgas gelangt dann über Leitung 22 in die zweite Druckwechseladsorptionsanlage 15.

In einer alternativen Anordnung kann das über Leitung 21 abgezogene Restgas der ersten Druckwechselanlage auch direkt in die Hochtemperaturkonvertierung 5a geleitet werden, was durch die gestrichelte Leitung 23 angedeutet ist.

25

30

35

40

45

50

55

60

65

3602352

H

H86/05

Bl. 1/1

Nummer:

36 02 352

Int. Cl.4:

C 01 B 3/56

Anmeldetag:

27. Januar 1986

Offenlegungstag:

30. Juli 1987

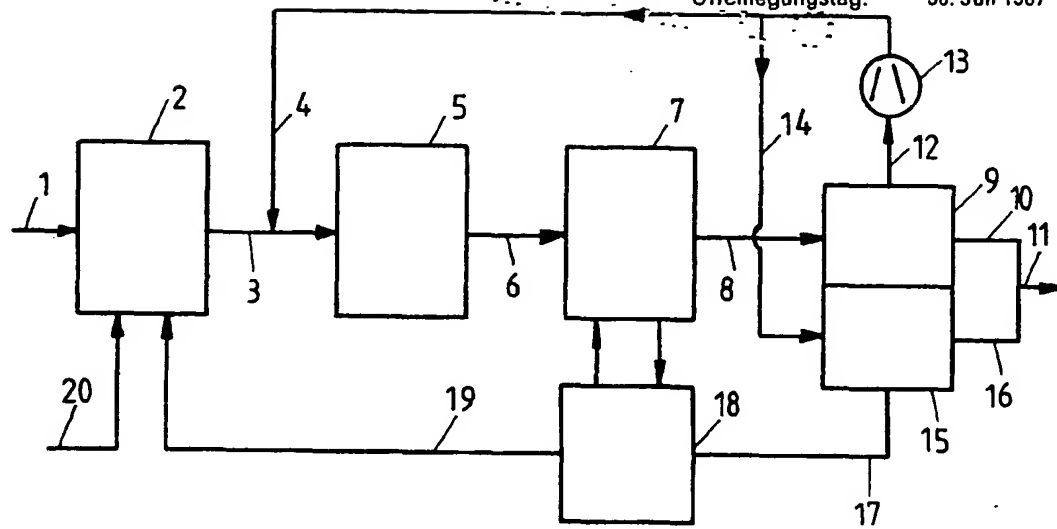


Fig. 1

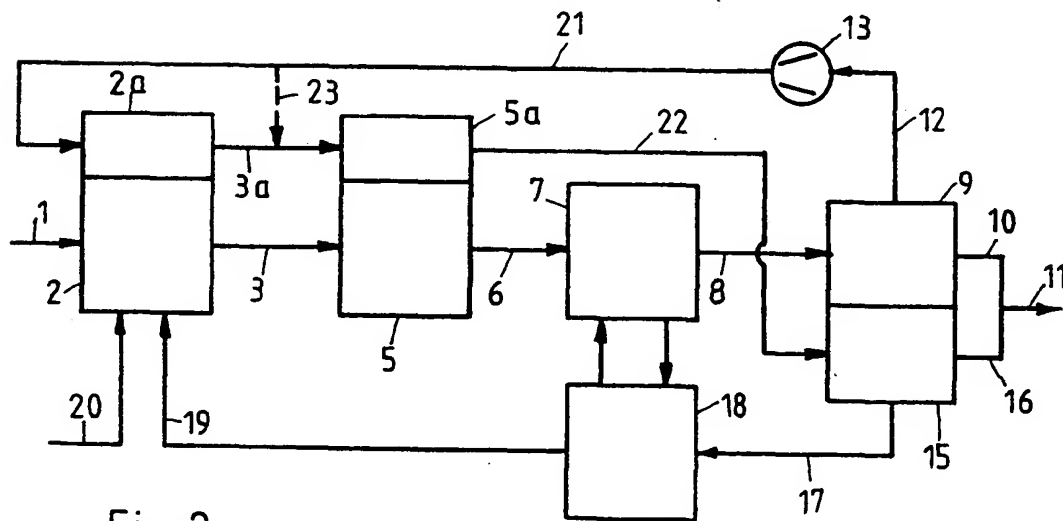


Fig. 2